

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2002-105646  
 (43)Date of publication of application : 10.04.2002

(51)Int.CI. C23C 16/448  
 H01L 21/205

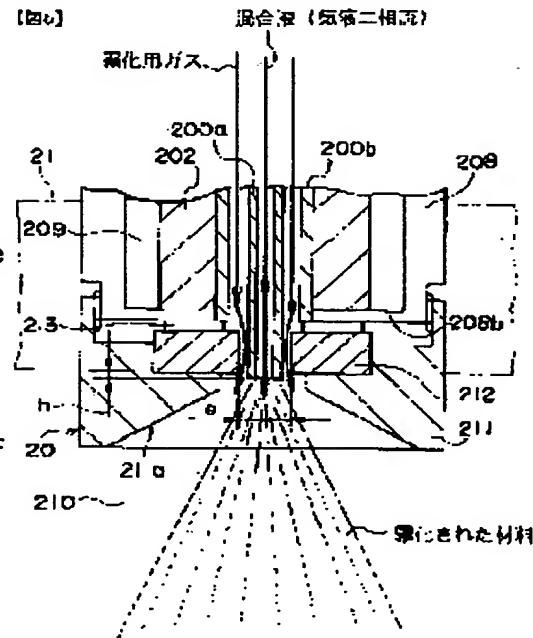
(21)Application number : 2000-292758 (71)Applicant : SHIMADZU CORP  
 MITSUBISHI ELECTRIC CORP  
 (22)Date of filing : 26.09.2000 (72)Inventor : YOSHIOKA NAOMI  
 KAWAMOTO TATSUJI  
 KAWAO MITSUSHI  
 MATSUNO SHIGERU  
 YAMADA AKIRA  
 MIYASHITA SHOJI  
 UCHIKAWA HIDEFUSA

## (54) GASIFIER

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a gasifier capable of effectively atomizing a liquid material and reducing generation of a non-gasified residual dross and a particle.

SOLUTION: An orifice member 212 is arranged at a tip of a double tube constituting of an inside piping 200a where a liquid material flows and an outside piping 200b where a gas for atomization flows, the gas for atomization is jetted from a clearance between the orifice member 212 and the inside piping 200a. As a result, atomization of the liquid material is effectively conducted, generation of the non-gasified residual dross and generation of the particle are reduced.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 28.11.2002

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application]

other than the examiner's decision of  
rejection or application converted  
registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's  
decision of rejection]

[Date of requesting appeal against  
examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2002-105646

(P2002-105646A)

(43)公開日 平成14年4月10日 (2002.4.10)

(51)Int.Cl.  
C 23 C 16/448  
H 01 L 21/205

識別記号

F I  
C 23 C 16/448  
H 01 L 21/205

テーマー\* (参考)  
4 K 0 3 0  
5 F 0 4 5

審査請求 未請求 請求項の数6 O L (全 11 頁)

(21)出願番号 特願2000-292758(P2000-292758)

(22)出願日 平成12年9月26日 (2000.9.26)

(71)出願人 000001993  
株式会社島津製作所  
京都府京都市中京区西ノ京桑原町1番地

(71)出願人 000006013  
三菱電機株式会社  
東京都千代田区丸の内二丁目2番3号

(72)発明者 吉岡 尚規  
京都府京都市中京区西ノ京桑原町1番地  
株式会社島津製作所内

(74)代理人 100084412  
弁理士 永井 冬紀

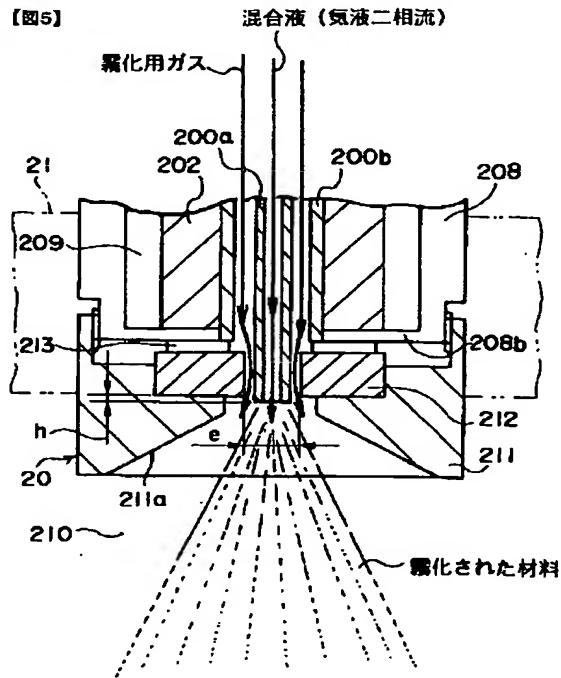
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 気化器

(57)【要約】

【課題】 液体材料の霧化をより効果的に行わせ、未気化残渣やパーティクルの発生を低減することができる気化器の提供。

【解決手段】 液体材料が流れる内側配管200aと霧化用ガスが流れる外側配管200bとで構成される2重管の先端にオリフィス部材212を設け、そのオリフィス部材212と内側配管200aとの隙間から霧化用ガスを噴出させる。その結果、液体材料の霧化をより効果的に行うことができ、未気化残渣の発生やパーティクルの発生を低減させることができる。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 液体有機金属若しくは有機金属溶液から成る液体材料とキャリアガスとを混合した気液混合材料を移送管路の先端部から噴霧する噴霧部と、噴霧された前記液体材料を気化する気化部とを備え、気化された前記液体材料をCVD成膜装置へと供給する気化器において、

前記移送管路は、気液2相流で前記液体材料が移送される内側配管と、前記内側配管が隙間を介して内挿されるとともに霧化用ガスを移送する外側配管とから成る二重配管構造を有し、

前記内側配管が隙間を介して貫挿される孔部が形成され、前記外側配管により移送された霧化用ガスを前記隙間から前記気化部へと噴出させるオリフィス部材を、前記内側配管の先端部に設けたことを特徴とする気化器。

【請求項2】 請求項1に記載の気化器において、気化された前記液体材料が再凝縮するのを防止する気化面が形成され、前記内側配管の先端部に近接して前記噴霧部の先端に設けられるノズルリングを備え、

前記オリフィス部材をPEEK (polyether ether ketone) で形成して前記ノズルリングと前記外側配管の先端との間に挟持するとともに、前記オリフィス部材と前記外側配管の先端との間にPTFE (polytetrafluoroethylene) から成るシール材を配設したことを特徴とする気化器。

【請求項3】 請求項2に記載の気化器において、前記ノズルリングは、前記噴霧部の先端に螺合する第1部材と、前記第1部材とは別体で形成され、前記オリフィス部材と前記第1部材との間に挟持される第2部材とから成ることを特徴とする気化器。

【請求項4】 請求項1に記載の気化器において、気化された前記液体材料が再凝縮するのを防止する気化面が形成されるとともに、前記内側配管の先端部に近接して前記気化部に固定されるノズルリングを備え、

前記オリフィス部材をPEEK (polyether ether ketone) で形成して前記ノズルリングと前記外側配管の先端との間に挟持するとともに、前記オリフィス部材と前記外側配管の先端との間にPTFE (polytetrafluoroethylene) から成るシール材を配設したことを特徴とする気化器。

【請求項5】 請求項1～請求項4のいずれかに記載の気化器において、

前記内側配管を前記噴霧部に固定する継手として、メタルガスケットおよびそのメタルガスケットを挟持するよう設けられる一対の継手部材を有するガスケット式シール継手を備え、前記一対の継手部材の一方を前記噴霧部に固設するとともに、前記一対の継手部材の他方を前記内側配管に固設して、前記ガスケット式シール継手の軸方向締め付け量の調整により、前記内側配管先端部の前記オリフィス部材からの突出量を調整可能としたこと

を特徴とする気化器。

【請求項6】 液体有機金属若しくは有機金属溶液から成る液体材料とキャリアガスとを混合した気液混合材料を移送管路の先端部から噴霧する噴霧部と、噴霧された前記液体材料を気化する気化部とを備え、気化された前記液体材料をCVD成膜装置へと供給する気化器において、

前記移送管路中において前記液体材料を環状噴霧流の状態で供給することを特徴とする気化器。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、CVD成膜に用いられ、液体有機金属や有機金属溶液等の液体材料を気化する気化器に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 半導体デバイス製造工程における薄膜形成方法の一つとしてMOCVD (Metal Organic Chemical Vapor Deposition) 法があるが、スパッタ等に比べて膜質、成膜速度、ステップカバレッジなどが優れていることから近年盛んに利用されている。MOCVD装置に用いられているCVDガス供給法としてはパブリング法や昇華法などがあるが、液体有機金属若しくは有機金属を有機溶剤に溶かした液体材料をCVDリアクタ直前で気化して供給する方法が、制御性および安定性の面でより優れた方法として注目されている。

## 【0003】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら、従来の気化器では、液体材料を気化させた際に未気化残渣が発生し易く、気化器に詰まりが発生したり、残渣によるパーティクルが成膜条件に影響を与える等して、成膜の安定性や再現性に問題があった。また、気化量をそれ程大きくすることができず、プロセス上のマージンがとれないという課題もあった。

【0004】 本発明の目的は、液体有機金属や有機金属溶液等を気化する気化器において、液体材料の霧化をより効果的に行わせ、未気化残渣やパーティクルの発生を低減することができる気化器を提供することにある。

## 【0005】

【課題を解決するための手段】 発明の実施の形態を示す図2、図4、図5および図10に対応付けて説明する。

(1) 図2、図4および図5に対応付けて説明すると、請求項1の発明は、液体有機金属若しくは有機金属溶液から成る液体材料とキャリアガスとを混合した気液混合材料を移送管路200の先端部から噴霧する噴霧部20と、噴霧された液体材料を気化する気化部21とを備え、気化された液体材料をCVD成膜装置へと供給する気化器2に適用され、移送管路200は、気液2相流で液体材料が移送される内側配管200aと、内側配管200aが隙間を介して内挿されるとともに霧化用ガスを移送する外側配管200bとから成る二重配管構造を有

し、内側配管200aが隙間を介して貫通される孔部が形成され、外側配管200bにより移送された霧化用ガスを前記隙間から気化部21へと噴出させるオリフィス部材212を、内側配管200aの先端部に設けたことにより上述の目的を達成する。

(2) 図5に対応付けて説明すると、請求項2の発明は、請求項1に記載の気化器において、気化された液体材料が再凝縮するのを防止する気化面211aが形成され、内側配管200aの先端部に近接して噴霧部20の先端に設けられるノズルリング211を備え、オリフィス部材212をPEEK (polyether ether ketone) で形成してノズルリング211と外側配管200bの先端との間に挟持するとともに、オリフィス部材212と外側配管200bの先端との間にPTFE (polytetrafluoroethylene) から成るシール材213を配設したものである。

(3) 図10に対応付けて説明すると、請求項3の発明は、請求項2に記載の気化器において、ノズルリング214は、噴霧部20の先端に螺合する第1部材214aと、第1部材214aとは別体で形成され、オリフィス部材212と第1部材214aとの間に挟持される第2部材214bとから成る。

(4) 請求項4の発明は、請求項1に記載の気化器において、気化された液体材料が再凝縮するのを防止する気化面215aが形成されるとともに、内側配管200aの先端部に近接して気化部21に固定されるノズルリング215を備え、オリフィス部材212をPEEK (polyether ether ketone) で形成してノズルリング215と外側配管200bの先端との間に挟持するとともに、オリフィス部材212と外側配管200bの先端との間にPTFE (polytetrafluoroethylene) から成るシール材213を配設したものである。

(5) 図3および図5に対応付けて説明すると、請求項5の発明は、請求項1～請求項4のいずれかに記載の気化器において、内側配管200aを噴霧部20に固定する継手として、メタルガスケット233およびそのメタルガスケット223を挟持するように設けられる一対の継手部材220a, 220bを有するガスケット式シール継手22を備え、一対の継手部材220a, 220bの一方220bを噴霧部20に固設するとともに、一対の継手部材220a, 220bの他方220aを内側配管200aに固設して、ガスケット式シール継手の軸方向締め付け量の調整により、内側配管先端部のオリフィス部材212からの突出量hを調整可能としたものである。

(6) 図2に対応付けて説明すると、請求項6の発明は、液体有機金属若しくは有機金属溶液から成る液体材料とキャリアガスとを混合した気液混合材料を移送管路200の先端部から噴霧する噴霧部20と、噴霧された液体材料を気化する気化部21とを備え、気化された液

体材料をCVD成膜装置へと供給する気化器2に適用され、移送管路200中において液体材料を環状噴霧流の状態で供給するようにしたものである。

【0006】なお、本発明の構成を説明する上記課題を解決するための手段の項では、本発明を分かり易くするために発明の実施の形態の図を用いたが、これにより本発明が発明の実施の形態に限定されるものではない。

【0007】

【発明の実施の形態】以下、図1～図11を参照して本発明の実施の形態を説明する。図1は気化装置全体の概略構成を示す図である。1は気化器2に液体有機金属や有機金属溶液等（以下では、これらを液体材料と呼ぶ）を供給する液体材料供給装置であり、供給された液体材料は気化器2で気化されてCVD装置に設けられたCVDリアクタに供給される。例えば、液体有機金属としてはCuやTaなどの有機金属があり、有機金属溶液としてはBa, Sr, Ti, Pb, Zrなどの有機金属を有機溶剤に溶かしたものがある。

【0008】液体材料供給装置1に設けられた材料容器3A, 3B, 3Cには、MOCVD用いられる液体材料4A, 4B, 4Cが充填されている。例えば、BST膜 (BaSrTi酸化膜) を成膜する場合には、原料であるBa, Sr, Tiを有機溶剤THF (tetrahydrofuran) で溶解したものが液体材料4A, 4B, 4Cとして用いられる。また、溶剤容器3DにはTHFが溶剤4Dとして充填されている。なお、容器3A～3Dは原料の数に応じて設けられ、必ずしも4個とは限らない。

【0009】各容器3A～3Dには、チャージガスライン5と移送ライン6A～6Dとが接続されている。各容器3A～3D内にチャージガスライン5を介してチャージガスが供給されると、各容器3A～3Dに充填されている液体材料4A～4Cおよび溶剤4Dの液面にガス圧が加わり、液体材料4A～4Cおよび溶剤4Dが各移送ライン6A～6Dへとそれぞれ押し出される。移送ライン6A～6Dに押し出された各液体材料4A～4Cおよび溶剤4Dは、ガス圧によってさらに移送ライン6Eへと移送され、この移送ライン6E内で混合状態となる。

【0010】移送ライン6Eにはキャリアガスライン7からキャリアガスが供給されるようになっており、キャリアガス、液体材料4A～4Cおよび溶剤4Dは気液2相流状態となって気化器2へと供給される。気化器2にはキャリアガスライン7を介してキャリアガスが供給されており、気化された材料はキャリアガスによってCVDリアクタへと送られる。

【0011】なお、チャージガスおよびキャリアガスには窒素ガスやアルゴンガス等の不活性ガスが用いられる。また、移送ライン6A～6Eにおける液体材料4A～4Cや溶剤4Dの滞留量はできるだけ低減するのが好ましく、本実施の形態では、移送ライン6A～6Cには1/8インチの配管を用いている。

【0012】各移送ライン6A～6Dには、マスフローメータ8A～8Dおよび遮断機能付き流量制御バルブ9A～9Dが設けられている。マスフローメータ8A～8Dで液体材料4A～4Cおよび溶剤4Dの流量を各々監視しつつ流量制御バルブ9A～9Dを制御して、液体材料4A～4Cおよび溶剤4Dの流量が適切となるようにしている。なお、移送ライン6Eの気化器直前にミキサを設けて、液体材料の混合状態をより向上させるようにしても良い。さらに、各液体材料4A～4Cの流量を制御する流量制御バルブ9A～9Dに代えて、ブランジャポンプ等のポンプを用いて流量制御するようにしても良い。

【0013】図2は気化器2を正面から見た断面図である。気化器2は液体材料4A～4Cを噴霧して霧状とするノズル部20と、ノズル部20から噴霧された液体材料をさらに気化する気化チャンバ21とを備えている。ノズル部20には二重管200が設けられており、移送ライン6Eから導入された液体材料4A～4Cの混合液およびキャリアガスライン7から導入されたキャリアガスは、この二重管200に導かれる。なお、このキャリアガスは液体材料4A～4Cを霧化するために用いられるものであり、以下では霧化用ガスと呼ぶこととする。

【0014】気化チャンバ21には加熱用のヒータh1～h6が設けられており、気化チャンバ21は液体材料4A～4Cの気化温度より高い温度に保持されている。ノズル部20から二点鎖線23で示すように鉛直下向きに噴霧された液体材料4A～4Cは、気化チャンバ21内で気化された後に、排出口24を介して不図示のCVDリアクタへと送られる。

【0015】22は移送ライン6Eを気化器のノズル部20に接続するための継手であり、図3に継手22部分の拡大図を示した。継手22は、一対のスリーブ220a, 220b、ナット221、プラグ222、メタルガスケット223とで構成されている。移送ライン6Eの配管224はスリーブ220aを軸方向に貫通するように配設されており、配管224は溶接等によりスリーブ220aに固設されている。スリーブ220a, 220bの互いに対向する面にはリング状に突出するシール面S1, S2がそれぞれ形成されており、各シール面S1, S2の間にメタルガスケット223を挟持するように配設してプラグ222をナット221にねじ込むことにより、配管224がノズル部20に固定されることになる。配管224は1/16インチのSUS管が用いられ、符号Cで示す部分においてスウェーペンジングにより外径1mm以下の細いチューブに加工されている。なお、この細いチューブの部分の寸法については、流量等を考慮して最適な太さに設定される。以下では、符号Cより下側の細管部分を内側配管200aと呼ぶこととする。

【0016】図4は図2のA部拡大図であり、上述した二重管200は内側配管200aと外側配管200bと

から成る。内側配管200aには液体材料4A～4Cとキャリアガスとの気液流体が流れ、内側配管200aと外側配管200bとの間の環状空間には霧化用ガスが流れる。外側配管200bは溶接等により水冷ブロック201に固設されており、内側配管200aは上述したスリーブ220a(図3参照)に固設されている。二重配管200の周囲には外側配管200bに接して冷却ロッド202が設けられており、図2に示すように冷却ロッド202は二重配管200の下端部分まで延在している。

【0017】冷却ロッド202の外周上部には雄ねじ部203が形成されており、水冷ブロック201の凹部204に形成された雌ねじ部205に前記雄ねじ部203をねじ込むようにして、冷却ロッド202を水冷ブロック201に固定する。図2に示すように、水冷ブロック201には冷却水路206が形成されており、冷却水パイプ207を介して外部から供給された冷却水がこの冷却水路206を循環することにより水冷ブロック201が冷却される。冷却ロッド202は水冷ブロック201により冷却され、さらに、冷却ロッド202は二重配管200を冷却する。

【0018】図2の水冷ブロック201の図示下側には冷却ブロック202の周囲を覆うケーシング208が設けられており、ケーシング下部には固定用フランジ208aが形成されている。このフランジ208aを気化チャンバ21に固定することにより、ノズル部20が気化チャンバ21に取り付けられる。なお、本実施の形態では、水冷ブロック201と冷却ロッド202とを別個に形成してネジ締結する構造としたが、これらを一体に形成しても良い。また、冷却ロッド202には銅のように熱伝導性の良い物質が用いられる。

【0019】次に、ノズル部20の先端部分の構造について図5のB部拡大図を参照して説明する。ケーシング208の先端部分208bは薄く形成されており、外側配管200bの先端部と溶接等により接合されている。そのため、ケーシング208の内部空間209と気化チャンバ空間210とは隔離されており、冷却ロッド202は気化ガスによる腐食から防止されている。内部空間209は図2に示すようにパイプ211を介して真空排気できる構造となっており、内部空間209を真空状態とすることにより、対流によるケーシング208から冷却ロッド202への熱侵入を防止している。

【0020】内側配管200aは外側配管200bよりも図示下方に突出し、さらに、オリフィス部材212の中心部に形成された孔を貫通して突出している。内側配管200aと外側配管200bとの間を図示下方に流れてきた霧化用ガスは、オリフィス部材212と外側配管200bとの間に形成された隙間、例えば、1mm以下の微小隙間を通って気化チャンバ空間210へと噴出される。この霧化用ガスによって、液体材料4A～4Cは

内側配管200aから排出される際に霧化され、霧状の液体材料4A～4Cが気化チャンバ空間210に噴霧される。

【0021】なお、本実施の形態の気化器では、内側配管200aの先端がオリフィス部材212の下方に僅かに突出した状態で使用するのが好ましい。この突出量hの調整は、図3に示した継手22の締め付け力を変えて行う。具体的には、メタルシールに必要な締め付け力で継手22を締め付けたときに、内側配管200aの先端がオリフィス部材212の下面とほぼ同一となるように内側配管200aの軸方向寸法を設定し、継手22の増し締めにより突出量hの微調整を行う。

【0022】オリフィス部材212は、ノズルリング211によってシール材213を挟持するようにケーシング先端部208bに固定される。ケーシング208の先端に袋ナット形式で取り付けられるノズルリング211には、円錐面状の気化面211aが形成されている。ノズルリング211はノズル部20から噴霧された液体材料4A～4Cがノズル部20先端部分に再凝縮するのを防止するものであり、気化チャンバ21に固定されるフランジ208a(図2参照)を介して流入する熱により高温に保たれている。その結果、霧化された液体材料4A～4Cが気化面211aに付着しても、未気化残渣が生じることはない。

【0023】上述したケーシング208、ノズルリング211、配管200a、200b等は、腐食等を考慮してSUS等で形成される。一方、オリフィス部材212、シール材213は、ノズルリング211から冷却ロッド202への熱浸入が低減されるように、断熱性の良い樹脂等が用いられる。特に、オリフィス部材212やシール材213は液体材料4A～4Cに対する耐食性も要求されるので、断熱性、耐熱性、耐薬品性に優れたPTFE(polytetrafluoroethylene)で形成するのが望ましい。また、高温環境やノズルリング211の締め付けによるオリフィス部材212の変形を防止するため、より硬度の高いPEEK(polyether ether ketone)で形成するようにしても良い。

【0024】このように、断熱材から成るオリフィス部材212やシール材213は、ノズルリング211から冷却ロッド202への熱浸入を低減することによって冷却ロッド202の温度上昇を防止しているが、逆に、ノズルリング211が冷却ロッド202により冷却されてノズルリング211の温度が低下するのを防止している。

【0025】《冷却ロッド202による冷却効果の説明》液体材料4A～4Cを気化器で気化させる際には、未気化残渣の発生や熱履歴による液体材料4A～4Cの変質を防止するために、液体材料4A～4Cの減圧と加熱とをほぼ同時に、かつ、瞬時に行う必要がある。本実施の形態では、二重配管200の軸方向に延在する冷却

ロッド202を二重配管200の周囲を覆うように配設し、かつ、冷却ロッド202を二重配管200の噴出部付近まで設けた。それにより、内側配管200aを流れる液体材料4A～4Cは、気化チャンバ空間210に噴出される直前まで充分に冷却されることになる。

【0026】ここで、冷却ロッド202とケーシング208との間には断熱空間209が形成され、冷却ロッド202とケーシング208とは薄肉の先端部208bのみが接触している。さらに、高温のノズルリング211との間には断熱性に優れるオリフィス部材212およびシール材213とが介在するため、高温の気化チャンバ21やノズルリング211から冷却ロッド202へ熱が浸入するのを低減することができる。

【0027】図6は冷却ロッド202の冷却効果を説明する図であり、気化チャンバ21を250°Cに加熱したときの内側配管200a内の軸方向温度分布データを示したものである。冷却水の温度は8°C、空間209の圧力は1333Pa(=10Torr)とした。図6において、縦軸は内側配管200aの温度、横軸は冷却ロッド202の先端から図示上方に測った距離を表しており、マイナスの距離は冷却ロッド202の先端から下方に突出している部分を表している。図6に示すように、250°Cという高温環境下においても、冷却ロッド202の冷却効果により内側配管200aの温度は十分低温に保たれており、例えば、ロッド先端から10mmの位置では約50°Cとなっている。

【0028】図7は、気化前後における液体材料の温度および圧力の変化を定性的に示したものであり、(a)は本実施の形態の気化器に関するものであり、(b)および(c)は従来の気化器に関するものである。図7において、縦軸は温度および圧力を、横軸は時間をそれぞれ表しており、図の左側領域は液体状態における温度および圧力を示し、図の右側領域は気化後の温度および圧力を表している。

【0029】図7の(b)は、特開平5-253402号公報に記載の装置を用いた場合の温度および圧力の変化を示したものである。特開平5-253402号公報に記載の装置では、気化器にポンプで送られてきた液体材料は、気化器に設けられた高温のディスクに接触して加熱された後に、減圧→気化を行うというプロセスが採用されている。また、図7の(c)は、特表平8-508315号公報に記載の装置を用いた場合の温度および圧力の変化を示したものである。特表平8-508315号公報に記載の装置では、加圧された液体材料を加熱した後に、減圧下に置かれたメッシュに染み込ませて気化させている。

【0030】図7の(b)および(c)のいずれの場合にも、液体材料が室温・高圧状態から高温・減圧状態に変化するまでの間状態Dが比較的長くなっている。この間状態では熱履歴により液体材料が変質しやすく、

未気化残渣の発生や気化器の詰まり等が生じやすい。一方、本実施の形態の気化器では、液体材料4A～4Cは内側配管200aから噴出される直前まで冷却ロッド202により冷却されているため、中間状態Dは図7(a)に示すように僅かな時間となり、液体材料4A～4Cの変質、未気化残渣および気化器の詰まり等を低減させることができる。

【0031】《噴霧性能についての説明》上述したように、内側配管200aは外径1mm以下の細管であって、以下に説明するように、管内の気液2相流が環状噴霧流となるように内側配管内200aを流れる液体材料4A～4Cおよびキャリアガスの流量を調整する。ここで、環状噴霧流とは、気液2相流の液相流量に比べて気相流量が多く、管壁に液膜が存在し、気相の管断面中心部には多数の液滴を伴っている流れである。なお、安定な噴霧を行うための流量条件については後述する。

【0032】また、噴霧性能は上述した液体材料4A～4Cおよびキャリアガスの流量や配管寸法だけでなく、外側配管200bを流れる霧化用ガスの流量にも依存する。図8は、内側配管200a内の液流量、ガス流量および外側配管200b内のガス流量と噴霧安定性との関係を説明する図である。なお、図8に示した測定では、内側配管200aを流れる液体としてTHFを用い、キャリアガスおよび霧化用ガスとして窒素ガスを用いた。

【0033】図8において、縦軸はキャリアガスの流量(SCCM)を表し、横軸はTHFの流量(cc/min)を表している。この測定では、噴霧状態を、連続した噴霧が観察される「安定噴霧」と、不連続に液滴が突沸して気化チャンバ内圧力が大きく変動する「不安定噴霧」とに区別して実験を行った。図8では、○印で安定噴霧のデータを表し、×印で不安定噴霧を表した。なお、霧化用ガスについては、圧力1333Pa(=10Torr)～6666Pa(=50Torr)で流量50SCCMとし、THFの1次圧は1.7MPaとした。また、気化チャンバ温度は250°Cとした。

【0034】図8に示すように、THF流量が多いほど噴霧が不安定になり、キャリアガスが多いほど安定に噴霧する傾向がある。また、キャリアガスが多い状態ではTHFの流量に上限があり、ラインL1がその限界を表している。例えば、キャリアガス流量=400SCCMとラインL1との交点では、THF流量は約1.7(cc/min)であるので、キャリアガス流量が400SCCMのときには、THFは1.7(cc/min)を超えて流せない。そして、ラインL1より下側で、かつ、ラインL2より左側の領域F1においては噴霧を安定的に行うことができ、ラインL1より下側で、かつ、ラインL2より右側の領域F2では噴霧が不安定となることが図8から分かる。

【0035】例えば、内側配管200aを流れる液体金属材料および溶剤THFの混合液流量を0.8(cc/

min)とした場合には、キャリアガス流量150(SCCM)、噴霧ガス流量50(SCCM)が好ましく、混合液流量を1.2(cc/min)とした場合には、キャリアガス流量250(SCCM)、噴霧ガス流量50(SCCM)が好ましい。

【0036】なお、図4の内側配管200aの外径に対してオリフィス部材212の孔径eを調節することにより、オリフィス部材212と内側配管200aとの隙間を流れる霧化用ガスの流速を適当な値に設定する。さらに、この隙間を流れる霧化用ガスによって、内側配管200aの先端部分はオリフィス部材212の孔に対してセンタリングされる。

【0037】《冷却ロッドの変形例》図9は冷却ロッド202の変形例を示す図であり、(a)は冷却ロッド202Bの断面図、(b)は冷却ロッド202Cの断面図である。図9(a)は図2の冷却ロッド202と水冷ブロック201とを一体構造としたものであり、水冷部251とロッド部252を備え、銅のような高熱伝導性の材料により形成される。このように一体構造とした冷却ロッド202Bでは、上述した冷却ロッド202と水冷ブロック201とをネジ構造により一体とした場合に比べて、ロッド部252の冷却効率が向上する。

【0038】図9(b)の冷却ロッド202Cは、図9(a)の冷却ロッド202Bにヒートパイプ構造をさらに追加したものである。冷却ロッド202Cでは、水冷部253に設けられた冷却水路206に近接する部分からロッド部254の先端にかけて円環状空洞255が形成されており、空洞255内にはアルコール等の冷媒が封入されている。空洞255内に封入された冷媒は高温部である空洞255の下部で蒸発し、低温部である空洞255の上部で液化する。そのため、ロッド部254の熱伝導に加えて、冷媒を介したロッド部254から水冷部253への熱移動により、冷却ロッド202Bに比べて冷却効率の向上を図ることができる。なお、冷却ロッド202Cでは部材に空洞255を形成してヒートパイプ構造としたが、図9(a)に示す冷却ロッド202Bに市販のヒートパイプを埋め込んだ構造としても良い。

【0039】図2、3に示した水冷ブロック201および冷却ロッド202では、互いの固定をネジ構造としたが圧接により一体としても良い。圧接構造を採用した場合、例えば、銅の冷却ブロック202に対して水冷ブロック201を異種金属であるSUSで形成した場合でも、異種金属界面の接伝達効率を向上させることができる。

【0040】《ノズルリングの変形例》図10は図5に示したノズルリング211の変形例を示す図である。図10の(a)は2分割構造のノズルリング214を示したものであり、ノズルリング214は袋ナット部214aと押さえリング214bとで構成されている。図5に示したノズルリング211では、ノズルリング211を

締め付けてケーシングに固定する際に、オリフィス部材212も一緒に回転してしまうという不具合が生じる。しかし、図10(a)に示す2分割構造のノズルリング214の場合には、袋ナット部214aを締め付けても、オリフィス部材212は押さえリング214bにより押さえられ、袋ナット部214aと一緒に回るのを防止することができる。

【0041】図10の(b)はノズルリング211の他の変形例である。ノズルリング215はフランジ216にネジ構造により固定されており、フランジ216はボルト217により気化チャンバ21の内壁面に固定されている。その結果、気化チャンバ21からノズルリング215への熱移動がより大きくなり、ノズルリング215を気化チャンバ21とほぼ同一温度に保つことができ、気化面215aにおける未気化残渣の発生を防止することができる。ノズルリング215の軸方向位置は、ノズルリング215をフランジ216へねじ込むことによりを調整する。なお、ここではノズルリング215とフランジ216とを別体としたが、両者を一体に形成しても良い。

【0042】ところで、ノズルリング211, 214, 215に霧化された液体金属材料が付着し難いように、それらの表面にPTFEをコーティングしても良い。これにより、未気化残渣の発生がより低減される。また、ノズルリング211, 214, 215の表面に酸化膜などの耐食性の黒色被膜を形成することにより、気化チャンバ21からの輻射熱を吸収しやすくして、ノズルリング211, 214, 215をより気化チャンバ21に近い温度に保つようにしても良い。

【0043】《移送ライン6Eと内側配管200aとの接続に関する説明》次に、移送ライン6Eと内側配管200aとの接続について説明する。上述した実施の形態では、図3のCに示すように、移送ライン6Eの配管224をスウェーペンジングにより絞り込んで外径1mm以下の細管に加工し、その細管を内側配管200aとして使用した。その結果、液体金属材料とキャリアガスとを混合した気液流体の流れを滑らかにし、液体金属材料の詰まりや材料変質の原因となるデッドボリュームを排除するようにした。

【0044】図11は接続方法の他の例を示す図である。図11の(a)は配管224の中に内側配管200aの上端部を内挿して溶接したものであり、(b)は(a)と同様に内側配管200aを内挿して配管224を外周からカシメた構造としたものである。いずれも低コストであることが特徴である。また、図11(c)に示すものでは、配管224が固設されたスリーブ220aにネジ部231を有する円筒孔232が形成されている。そして、先端部外周にPTFEのリング状シール材233を装着した内側配管200aを円筒孔232に挿入し、内側配管200aに外挿されたセットスクリュー

234を円筒孔232のネジ部231に締め込む。その結果、内側配管200a外周面と円筒孔232の内周面とがシール材233によりシールされる。この場合、比較的安価であり、詰まりの生じやすい内側配管200aのみを容易に交換することができる。

【0045】上述した実施の形態では、液体材料4A～4Cと接する金属部分、例えば、配管200a, 200b, 224や締手22をSUS製としたが、より耐食性の高い材質であるTiやTi合金(TiN等)を用いても良い。

【0046】以上説明した実施の形態と特許請求の範囲の要素との対応において、二重管200は移送管路を、ノズル部20は噴霧部を、気化チャンバ21は気化部を、袋ナット部214aは第1部材を、押さえリング214bは第2部材をそれぞれ構成する。

【0047】

【発明の効果】以上説明したように、請求項1～請求項5の発明によれば、気液2相流の液体材料を内側配管から噴出するとともに、内側配管とオリフィス部材との隙間から霧化用ガスを噴出することにより、液体材料の霧化をより効果的に行うことができる。その結果、未気化残渣の発生やパーティクルの発生を低減させることができる。請求項2～請求項4の発明によれば、ノズルリングと移送管路を構成する外側配管との間に断熱性のオリフィス部材およびシール部材を配することにより、ノズルリングから移送配管への熱浸入を低減することができる。請求項5の発明によれば、内側配管先端部のオリフィス部材からの突出量を容易に調整することができ、最適な噴霧条件に調整しやすい。請求項6の発明によれば、移送管路中の液体材料を環状噴霧流とすることにより噴霧部の霧化性能を向上させることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】気化装置全体の概略構成を示す図である。

【図2】気化器2を詳細に示す断面図である。

【図3】締手22の拡大図である。

【図4】図2のA部の拡大図である。

【図5】図2のB部の拡大図である。

【図6】冷却ロッド202の冷却効果を説明する図である。

【図7】気化前後における液体材料の温度および圧力の変化を定性的に示す図であり、(a)は本実施の形態の気化器に関するもので、(b)および(c)は従来の気化器に関するものである。

【図8】噴霧安定性を説明する図である。

【図9】冷却ロッド202の変形例を示す図であり、(a)は第1の変形例を、(b)は第2の変形例をそれぞれ示す。

【図10】ノズルリング211の変形例を示す図であり、(a)は第1の変形例を、(b)は第2の変形例をそれぞれ示す。

【図11】配管224および内側配管200aの他の接続方法を示す図であり、(a)は第1の例、(b)は第2の例、(c)は第3の例をそれぞれ示す。

### 【符号の説明】

## 2 氧化器

## 2.0 ノズル部

## 2.1 水化チャンバ

290 2重管

\* 200a 内側配管

200 h 外側配管

201 水冷ブロック

202, 202B, 2

208 ケーシング

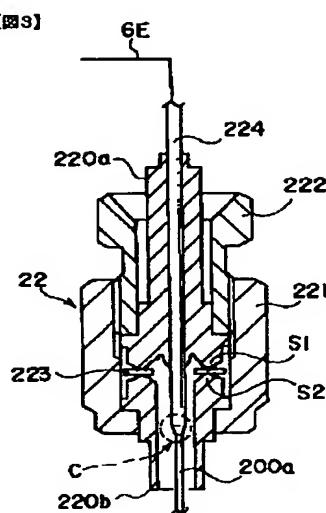
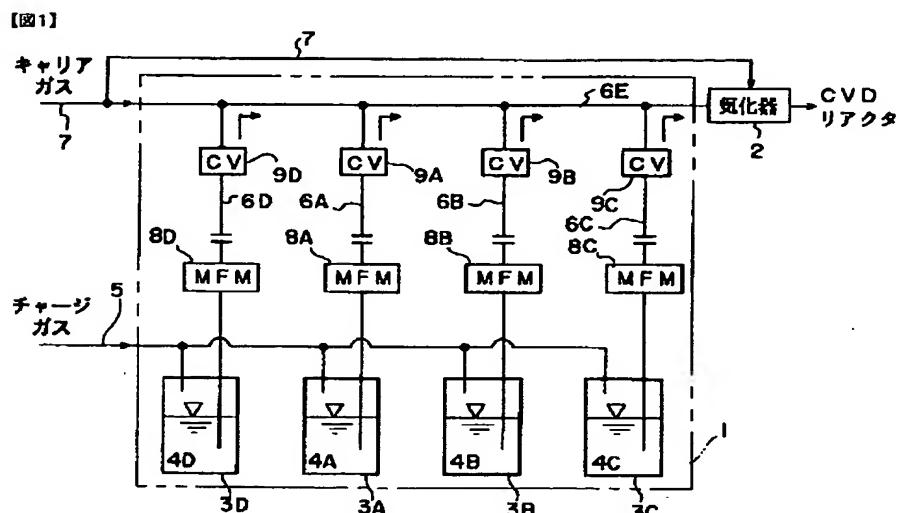
### 211, 214, 215 ノズルリング

## 2.1.2 オリフィス部材

\*

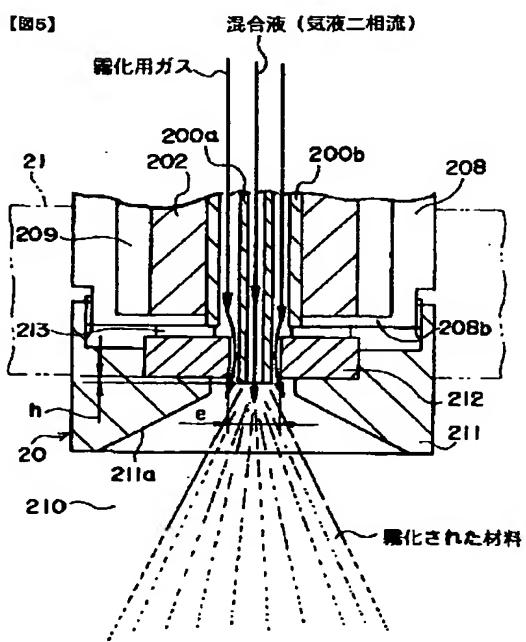
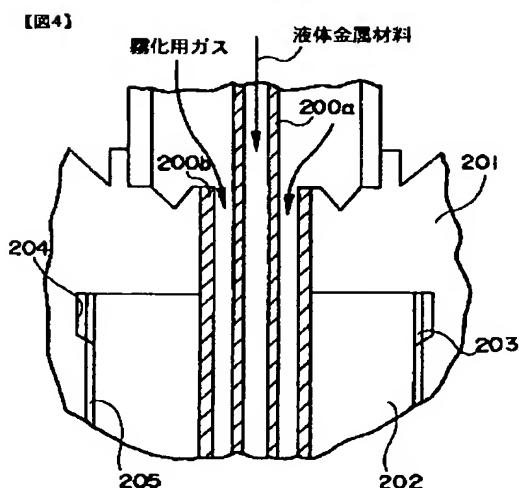
〔図1〕

〔図3〕

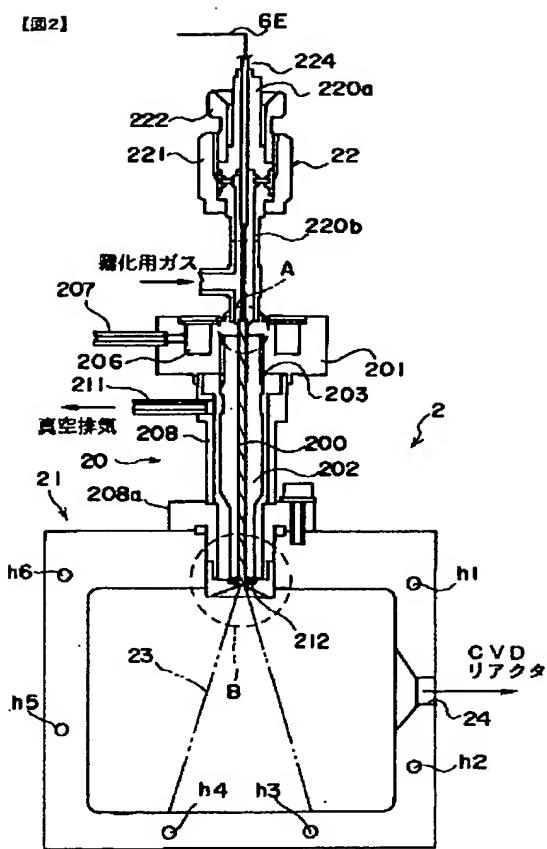


[図4]

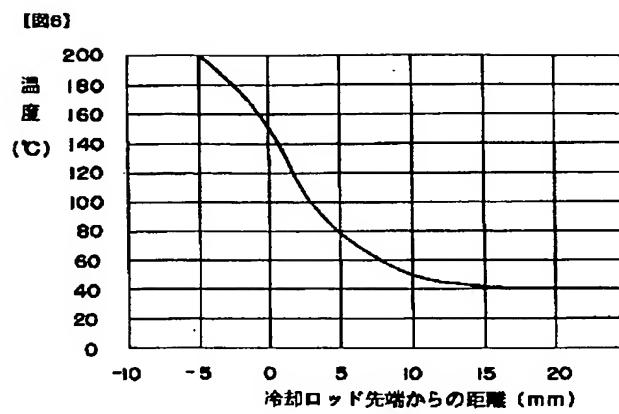
[図5]



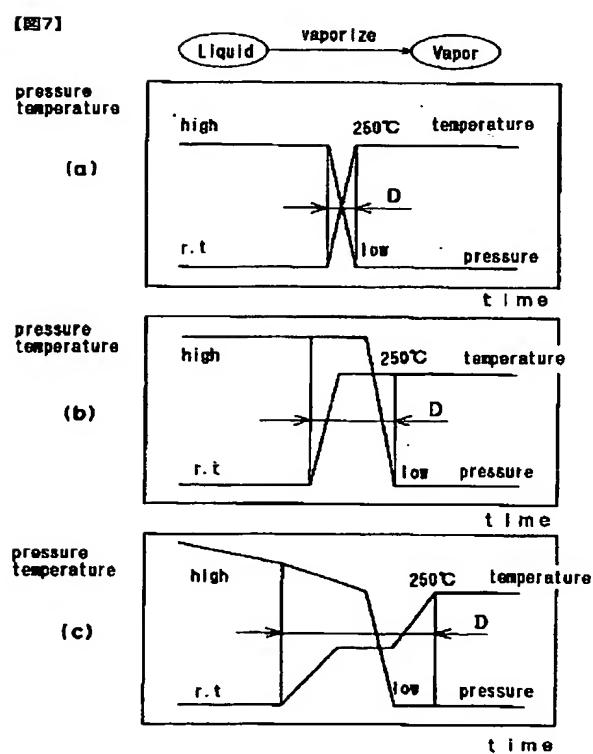
【図2】



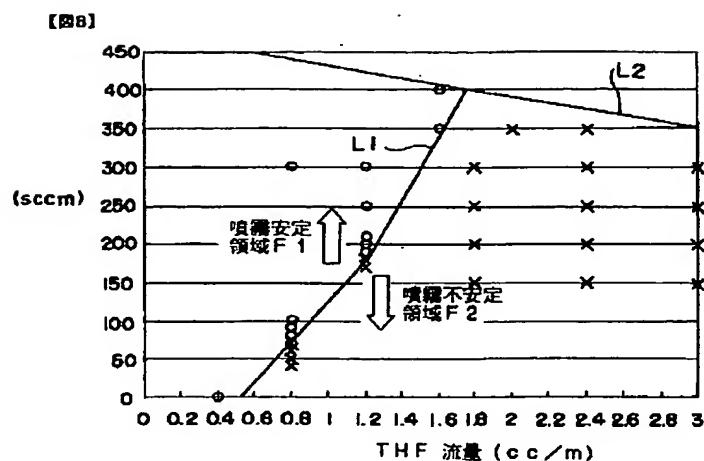
【図6】



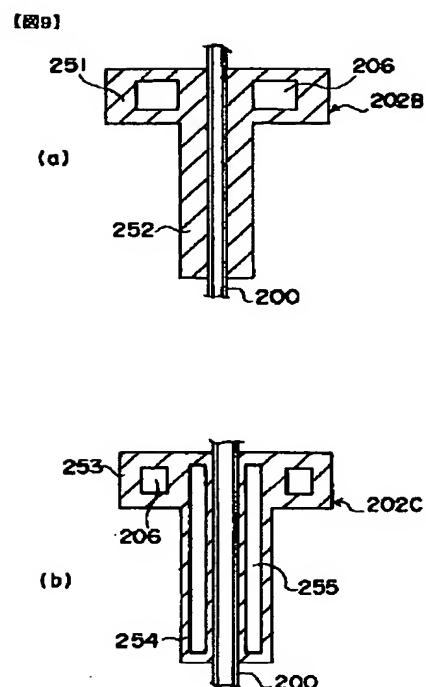
【図7】



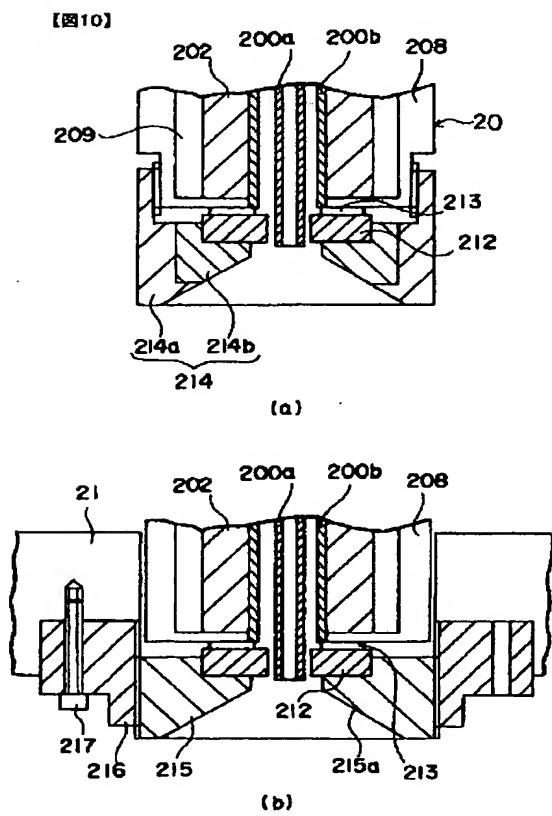
【図8】



【図9】

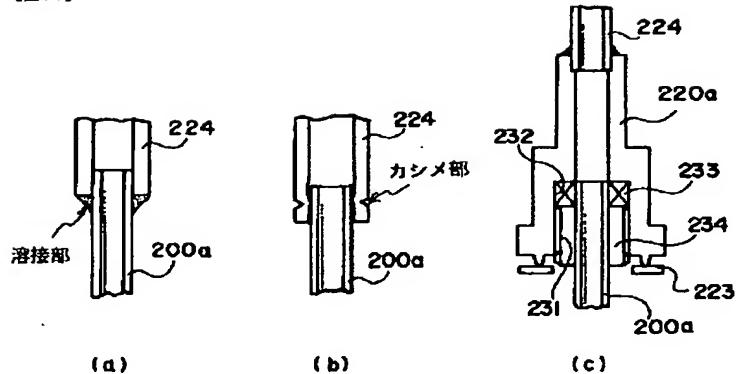


【図10】



【図11】

【図11】



## フロントページの続き

(72)発明者 川本 達司  
京都府京都市中京区西ノ京桑原町1番地  
株式会社島津製作所内

(72)発明者 川尾 満志  
京都府京都市中京区西ノ京桑原町1番地  
株式会社島津製作所内

(72)発明者 松野 繁  
東京都千代田区丸の内二丁目2番3号 三  
菱電機株式会社内

(72)発明者 山田 朗  
東京都千代田区丸の内二丁目2番3号 三  
菱電機株式会社内

(72)発明者 宮下 章二  
東京都千代田区丸の内二丁目2番3号 三  
菱電機株式会社内

(72)発明者 内川 英興  
東京都千代田区丸の内二丁目2番3号 三  
菱電機株式会社内

F ターム(参考) 4K030 AA11 EA01 KA46  
5F045 AA04 AC07 AC16 BB15 EE02  
EE04 EE14 GB04 GB06